



# First-Principles Study of Inorganic Double Perovskites for the Application of Solar Cells and Fuel Cells

著者	Zhao Shuai
学位授与番号	17104甲生工第280号
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10228/00006199">http://hdl.handle.net/10228/00006199</a>

氏名・(本籍)	ZHAO SHUAI ( 中国 )
学位の種類	博 士 ( 工 学 )
学位記番号	生工博甲第280号
学位授与の日付	平成29年3月24日
学位授与の条件	学位規則第4条第1項該当
学位論文題目	First-principles study of inorganic double perovskites for the application of solar cells and fuel cells (第一原理を用いた太陽電池及び燃料電池に応用する 無機ダブルペロブスカイトに関する研究)
論文審査委員会	委員長 教 授 早瀬 修二
論文審査委員	〃 馬 廷麗
論文審査委員	〃 横野 照尚
論文審査委員	准教授 パンディ シャム スディル

## 学 位 論 文 内 容 の 要 旨

本研究はエネルギー変換素子に用いられているペロブスカイト材料の設計に関する。1つは太陽電池の光吸収材料として用いられているハロゲン化鉛ペロブスカイト代替材料である。ペロブスカイトは太陽電池の吸光層材料として近年非常に注目されている。しかし安定性及び環境問題が懸念されており新規材料の出現が待たれている。一方ペロブスカイトは酸化物燃料電池の触媒、イオン導電体として使用されているが、触媒活性が低いという問題点があった。趙氏は無機ダブルペロブスカイト材料を対象とし、第一原理計算方法を用いて太陽電池及び燃料電池の性能を向上するための設計指針を得ることを目的として研究を行った。本論文はダブルペロブスカイトの電子構造、光学性質及びイオンの拡散、電子の導電性などについて理論研究を行った結果を報告している。

第一章では序論としてペロブスカイト太陽電池及び酸化物燃料電池についての背景を述べている。これまでの理論研究結果及び問題点について調べ、本論文の研究目的及びモチベーションを記載している。

第二章では本論文に用いた第一原理理論の詳細及びシミュレーションについてまとめている。また密度汎関数理論(DFT)及びオンサイドクロンポテンシャル校正方法、さらに始状態と終状態の間で最もエネルギーを使わずに変化できる反応経路を求める計算手法を記載している。

第三章では太陽電池の光吸収層として設計したペロブスカイト  $\text{Cs}_2\text{NaBX}_6$  ( $\text{B} = \text{Sb}, \text{Bi}; \text{X} = \text{Cl}, \text{Br}, \text{I}$ ) の電子構造及び光学性質についての理論計算結果を記載している。Bサイトに混合金属原子を導入することにより、 $\text{Cs}_2\text{NaSbI}_6$  と  $\text{Cs}_2\text{NaBiI}_6$  のバンドキ

ャブをそれぞれ 1.65 eV と 1.68 eV に調整できることを見出した。これらの材料は太陽電池の吸光層として期待できると記載している。

第四章では太陽電池の光吸収層として設計した安定性に優れたペロブスカイト系である  $\text{Sr}_2\text{BMoO}_6$  を対象とし、B サイトに Mg, Ca, Zn をドーピングした場合の電子構造及び光学性質について理論計算を行った結果を記載している。B サイトはアルカリ金属のドーピングにより金属から半導体へ変化できることを明らかにした。

第五章では燃料電池の触媒層、イオン輸送層提案を目指してモリブデンをベースとしたペロブスカイト  $\text{Sr}_2\text{BMoO}_6$  の B サイトに遷移金属イオン Cr, Co と Ni をドーピングし、材料のイオン拡散及び導電性について理論計算を行っている。これらの金属イオンをドーピングした後で、材料の構造中に形成される欠陥形成がイオンマイグレーションに及ぼす影響を議論している。コバルトでドーピングしたダブルペロブスカイトが一番期待できると結論付けている。

第六章では燃料電池の触媒層、イオン輸送層提案を目指して  $\text{Sr}_2\text{Ti}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_{6-\delta}$  構造を検討している。チタン及び鉄をドーピングすることにより構造中に生成する酸素欠損に関する理論的研究結果を述べている。

第七章は結論を記載している。太陽電池の光吸収層、燃料電池の触媒、およびイオン輸送層として有効と推定できる構造を提案できたと記載している。

## 学位論文審査の結果の要旨

本論文に関し、ペロブスカイト構造が太陽電池の光吸収層として理論的にどこが優れているか、新物質の有効質量に関する質問、欠陥構造とイオン導電性の相関などに関する質問がなされ、いずれも著者から明確な回答が得られた。

また、公聴会においても多数の出席者があり、種々の質問がなされたが、いずれも著者の説明によって質問者の理解が得られた。

以上により、論文調査及び最終試験の結果に基づき、審査委員会において慎重に審査した結果、本論文が博士（工学）の学位に十分値するものであると判断した。